

**GRANULAR INORGANIC FILLER, PROCESS FOR PRODUCING THE FILLER AND RESIN COMPOSITIONS CONTAINING THE SAME****Patent number:** WO0242382**Publication date:** 2002-05-30**Inventor:** IMANISHI YASUTAKA (JP); ARAKAWA TATEKI (JP); KAWASHIMA JUNICHI (JP); MIYAJI MIKIO (JP); MATSUMURA KAZUTOYO (JP); HAMAIE TSUYOSHI (JP); WATANABE RYOHEI (JP); OTSUKA KATSUHIRO (JP)**Applicant:** ISHIHARA SANGYO KAISHA (JP); MATSUMURA SANGYO CO LTD (JP); IMANISHI YASUTAKA (JP); ARAKAWA TATEKI (JP); KAWASHIMA JUNICHI (JP); MIYAJI MIKIO (JP); MATSUMURA KAZUTOYO (JP); HAMAIE TSUYOSHI (JP); WATANABE RYOHEI (JP); OTSUKA KATSUHIRO (JP)**Classification:****- International:** C09C3/06; C08K9/08**- european:** C08K3/34; C08K9/08; C09C1/02H; C09C1/30D4B; C09C1/40D; C09C3/04B; C09C3/06**Application number:** WO2001JP10137 20011120**Priority number(s):** JP20000357562 20001124; JP20010142036 20010511**Also published as:**

US2004116578 (A1)

JP2002220549 (A)

**Cited documents:**

EP0957140

US4338241

JP5117658

**Report a data error here****Abstract of WO0242382**

Provided are a granular inorganic filler which is highly effective in improving the physical properties of resins and excellent in working efficiency, working atmosphere, productivity and economical efficiency, a process for producing the filler, and resin compositions excellent in mechanical properties, surface appearance, flame retardance and antiblock properties. The filler is produced by granulating a mixture comprising inorganic filler particles having a mean particle diameter of 0.01 to 20  $\mu\text{m}$  and a binder in such a way as to give an apparent density of 0.1 to 3.0 g/ml and a breakage rate of 5 to 80 wt%. The resin compositions are prepared by adding the granular inorganic filler to resins.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2002 年 5 月 30 日 (30.05.2002)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 02/42382 A1

- (51) 国際特許分類: C09C 3/06, C08K 9/08
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/10137
- (22) 国際出願日: 2001 年 11 月 20 日 (20.11.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2000-357562 2000 年 11 月 24 日 (24.11.2000) JP  
特願 2001-142036 2001 年 5 月 11 日 (11.05.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 石原産業株式会社 (ISHIHARA SANGYO KAISHA, LTD.) [JP/JP]; 〒550-0002 大阪府大阪市西区江戸堀 1 丁目 3 番 15 号 Osaka (JP). 松村産業株式会社 (MATSUMURA SANGYO CO., LTD.) [JP/JP]; 〒555-0001 大阪府大阪市西淀川区佃 7 丁目 3 番 8 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 今西康隆 (IMANISHI, Yasutaka) [JP/JP]. 荒川建城 (ARAKAWA, Tateki)
- (74) 代理人: 弁理士 水野昭宣 (MIZUNO, Akinobu); 〒150-0044 東京都渋谷区円山町 22 番 12 ライオンズマンション 渋谷道玄坂 303 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許

[続葉有]

(54) Title: GRANULAR INORGANIC FILLER, PROCESS FOR PRODUCING THE FILLER AND RESIN COMPOSITIONS CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 顆粒状無機質充填剤及びその製造方法並びに該顆粒状無機質充填剤を配合してなる樹脂組成物

(57) Abstract: Provided are a granular inorganic filler which is highly effective in improving the physical properties of resins and excellent in working efficiency, working atmosphere, productivity and economical efficiency, a process for producing the filler, and resin compositions excellent in mechanical properties, surface appearance, flame retardance and antiblock properties. The filler is produced by granulating a mixture comprising inorganic filler particles having a mean particle diameter of 0.01 to 20  $\mu$ m and a binder in such a way as to give an apparent density of 0.1 to 3.0 g/ml and a breakage rate of 5 to 80 wt%. The resin compositions are prepared by adding the granular inorganic filler to resins.

(57) 要約:

樹脂の物性改良効果が高く、作業効率や作業環境が良好で、生産性及び経済性の優れた顆粒状無機質充填剤及びその製造方法を提供すると共に、機械的物性、表面外観、難燃性及びアンチブロッキング性に優れた樹脂組成物を提供する。平均粒子径が 0.01~20  $\mu$ m の無機質充填剤粒子と、バインダとを見掛け密度 0.1~3.0 g/ml、破壊率 5~80 重量%になるように造粒し、顆粒状無機質充填剤とする。また、この顆粒状無機質充填剤を樹脂に配合し、樹脂組成物とする。



(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

## 明 細 書

### 顆粒状無機質充填剤及びその製造方法並びに 該顆粒状無機質充填剤を配合してなる樹脂組成物

#### 技術分野

本発明は顆粒状無機質充填剤、無機質充填剤粒子をバインダで顆粒化する製造方法、及び該顆粒状無機質充填剤を配合して得られる樹脂組成物に関するものである。

#### 背景技術

各種の充填剤はそれぞれの特徴を生かして、増量材、補強材、難燃剤、アンチブロッキング材等として種々の熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂に配合されており、最終製品としてはゴミ袋、洗面器、各種プラスチック製雑貨製品等の身の回りの製品から、電線、自動車関連、家電関連等の様々な分野で数多く使用されている。また、無機質の充填剤は、平均粒子径の小さいものを用いると樹脂の物性を改良する効果が高いことが知られている。

一般的に各種の樹脂は、充填剤、着色顔料、安定剤、分散剤等と混練機、ニーダー、ミキサー等を用いて熔融混練され、一旦造粒されペレット化される。造粒されたペレットは加熱熔融され、射出成形機、押出成形機、ブロー成形機等を用いて所望の製品に成形される。

各種の無機質充填剤と樹脂等とを熔融混練する場合、無機質充填剤の平均粒子径が細くなればなるほど、見掛け密度が小さくなり熔融混練の作業性は落ちる。この現象は、無機質充填剤に内包される内部空気が原因となっており、その内部空気を脱気し、更に圧縮等して物理的に内部空気を抜き取り、見掛け密度を大きくし、無機質充填剤の嵩を減容すれば作業性が改善されることは公知である。

しかし、更に作業性を改善し、押出し生産量を上げようとした場合、無機質充填剤の嵩を更に減容する必要がある。つまり、より固く無機質充填剤を固めれば可能であるが、得られた樹脂組成物の成形品中で、無機質充填剤が分散不良を起こし、物性改良効果が得られず、また、分散し切れない無機質充填剤が成形品の

表面外観を悪化させるという問題があった。

また、無機質充填剤は物理的に圧縮等の加工を施し、内部空気を抜き取って減容することができるが、配合量を多くする場合、攪拌羽根を用いて混合作業を行うようなミキサー、例えばヘンシェル型ミキサーやスーパーミキサー等で樹脂等との混合作業を長時間行なう必要があり、減容されたものであっても攪拌羽根のせん断応力を長時間受ければ、空気を再度内包してしまい内部空気の量が増え混練作業の改善効果が損なわれ生産効率が落ちる。また、減容してあるとはいえ紙袋やフレコンから無機質充填剤をホッパーや混合機等に移し変える時に粉じんが発生し、作業環境を悪化させる等の問題があった。

従来の技術について説明した上記の問題点や課題から明らかなごとく、少なくとも溶融混練する段階までの外部からの応力に対する耐久性に優れ（例えば、予備混合段階でのミキサー等の攪拌羽根による応力を受けても壊れ難い。）、樹脂等の溶融混練作業の生産性を改善し、所望の最終製品に何ら悪影響を与えず、粉じんも発生し難く作業環境も改善できる無機質充填剤を提供することが課題となっている。

### 発明の開示

本発明の目的は、上記課題の解決、即ち、ミキサー等の攪拌羽根によるせん断応力を受けても樹脂等との溶融混練作業の生産性を落とさない耐久性に優れ、更に樹脂組成物中で無機質充填剤が分散しやすく、また更に、粉じんの発生を劇的に抑え作業環境を改善できる顆粒状無機質充填剤及びその製造方法並びに該顆粒状無機質充填剤を配合してなる樹脂組成物を提供することにある。

本発明者らは、以上に述べた問題点を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、バインダーを用いて平均一次粒子径が $0.01 \sim 20 \mu\text{m}$ の無機質充填剤粒子を見掛け密度 $0.1 \sim 3.0 \text{ g/ml}$ の顆粒状に造粒すれば、低コストで無機質充填剤粒子を80%以上含有する顆粒状無機質充填剤を製造することができること、更に、破壊率を5～80重量%とした該顆粒状無機質充填剤は外部応力に対して耐久性が強く、ミキサー等の攪拌羽根によっても壊れ難く、樹脂等の溶融混練作業性を改善し、空気輸送もし易く、粉じんも発生し難く作業環境も改善できること

を見出し、本発明を完成した。

すなわち、本発明は平均一次粒子径が $0.01 \sim 20 \mu\text{m}$ の無機質充填剤粒子と、バインダーとからなり、見掛け密度が $0.1 \sim 3.0 \text{ g/ml}$ 、破壊率が $5 \sim 80$ 重量%であることを特徴とする顆粒状無機質充填剤及びその製造方法並びに該顆粒状無機質充填剤を配合してなる樹脂組成物である。

本発明は、平均一次粒子径が $0.01 \sim 20 \mu\text{m}$ の無機質充填剤粒子と、バインダーと、分散剤とからなり、見掛け密度が $0.1 \sim 3.0 \text{ g/ml}$ 、破壊率が $5 \sim 80$ 重量%であることを特徴とする顆粒状無機質充填剤及びその製造方法並びに該顆粒状無機質充填剤を配合してなる樹脂組成物にも関する。

本発明は、また、(1) 無機質充填剤粒子とバインダーとに湿潤剤を加えて成形した後、乾燥することを特徴とする該顆粒状無機質充填剤の製造方法や、(2) 無機質充填剤粒子とバインダーと分散剤とに湿潤剤を加えて成形した後、乾燥することを特徴とする該顆粒状無機質充填剤の製造方法を提供している。該製造方法は、(a) 無機質充填剤粒子とバインダーとを攪拌しながら湿潤剤を加えて混合した後、成形することを特徴とする方法、及び(b) 無機質充填剤粒子とバインダーと分散剤とを攪拌しながら湿潤剤を加えて混合した後、成形することを特徴とする方法を包含している。

さらに、本発明は、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂及びそれらの配合物から成る群から選ばれたものを主成分としている樹脂に、該顆粒状無機質充填剤を配合せしめてあることを特徴とする樹脂組成物を提供している。

本発明のその他の目的、特徴、優秀性及びその有する観点は、以下の記載より当業者にとっては明白であろう。しかしながら、以下の記載及び具体的な実施例等の記載を含めた本件明細書の記載は本発明の好ましい態様を示すものであり、説明のためにのみ示されているものであることを理解されたい。本明細書に開示した本発明の意図及び範囲内で、種々の変化及び／又は改変（あるいは修飾）をなすことは、以下の記載及び本明細書のその他の部分からの知識により、当業者には容易に明らかであろう。

### 発明を実施するための最良の形態

本発明の顆粒状無機質充填剤は、平均一次粒子径が $0.01 \sim 20 \mu\text{m}$ の無機質充填剤粒子と、バインダとからなり、 $0.1 \sim 3.0 \text{ g/ml}$ の見掛け密度と $5 \sim 80$ 重量%の破壊率を有している。無機充填剤粒子には後述のように、補強剤、難燃剤等各種のものを用いることができるが、いずれも一次粒子径が上記範囲内にあると、これを配合した樹脂成形品の物性改良効果が大きく、さらに平均一次粒子径の範囲が $0.1 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲内にあるものは改良効果がより優れている。例えば補強剤として用いるタルク粒子の場合、平均一次粒子径が $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ 、好ましくは $1 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲内にあると、樹脂成形品の剛性、引張強度、衝撃強度などの強度特性を高めたり、成形後の樹脂成形品の収縮を制御する効果がより優れている。

見掛け密度を上記範囲より小さくすると、樹脂成形品の生産効率が下がり、また破壊率が上記範囲より大きいと保管中や輸送中に顆粒状物が容易に壊れ、また破壊率が上記範囲より小さいと、樹脂と共に成形しても顆粒状物が壊れ難く、樹脂成形品中に未分散粒子や凝集粒子として残ってしまう。見掛け密度のより好ましい範囲は、 $0.7 \sim 2.0 \text{ g/ml}$ である。破壊率のより好ましい範囲は、無機質充填剤粒子の種類によって異なるが、例えばタルク粒子の場合は $5 \sim 60$ 重量%、水酸化マグネシウム粒子の場合は $5 \sim 40$ 重量%、シリカ粒子の場合は $30 \sim 80$ 重量%である。見掛け密度や破壊率はバインダ種やバインダの含有量、あるいは後述の製造条件を変えることで、任意に調整することができる。

本発明において、見掛け密度及び破壊率は下記の方法により求めたものである。

#### (見掛け密度の測定方法)

1. 試料を目開きが $1.4 \text{ mm}$ の篩上に載せ、ハケで均等に軽く掃きながら篩を通す。
2. 上記の試料を漏斗を用い、JIS K5101に規定された見掛け密度測定装置に付属する受器に山盛りになるまで投入する。
3. 受器の投入口から上部の山盛りになった試料をヘラで削り取り、受器内の試

料の重量を測定し、下式にて算出する。

$$\text{見掛け密度 (g/ml)} = \text{受器内の試料の重量 (g)} / \text{受器の容量 (ml)}$$

(破壊率の測定方法)

1. 試料 100 g を 100 × 100 mm の磁性ポットに投入し、35 g (3 cm Φ) の磁性球 3 個を粉砕メディアとして加え、ボールミルにて 75 rpm で 15 分間粉砕する。
2. 粉砕された試料を #60 メッシュの篩にかけ篩下を秤量し、下式にて算出する。

$$\text{破壊率 (重量\%)} = [\text{篩下重量 (X g)} / \text{試料重量 (100 g)}] \times 100$$

顆粒状無機質充填剤の形状は棒状、円柱状、針状、球状、粒状、フレーク状、不定形など特に制限はなく、用途に応じて適宜設定できる。上記の見掛け密度の範囲内にあれば、その大きさにも特に制限はないが、溶融混練や成形に用いる樹脂ペレットより小さい方が溶融混練機や成形機で分散する際に有利である。例えば、棒状や円柱状では平均軸長 0.5 ～ 5 mm、軸比 0.3 ～ 3 にするのが好ましく、上記平均軸長の範囲で軸長と軸径とをほぼ同じ大きさにするとさらに好ましい。

本発明の顆粒状無機質充填剤中の無機質充填剤粒子の含有量は、本発明の特徴を損なわない範囲の顆粒状無機質充填剤の破壊率を維持するために必要なバインダーの含有量によって決まる。即ち、バインダが少量に過ぎると、本発明に必要とされる特定の破壊率の上限を超え、壊れ易くなってしまう。従って、バインダの好ましい含有量は 0.1 ～ 20 重量%であり、さらに好ましくは 0.5 ～ 10 重量%である。

本発明で用いるバインダは、無機質充填剤粒子との造粒性が高く、無色または白色に近く、不活性で安定な物質であり、樹脂成形品の物性を低下させないものであれば望ましく、例えばベントナイト、カオリン、セリサイト、酸性白土など



湿潤状態下で高い粘結性を示す粘土鉱物（日本粘土学会編、「粘土ハンドブック」（第2版）、技報堂、1987年；前野昌弘著、「そこが知りたい 粘土の科学」、日刊工業新聞社、1993年7月30日）、及びコロイダルシリカ、石膏などの無機物、ゼラチン、膠、リグニン、セルロース、ポリビニルアルコール、デンプン、寒天、ワックス、高級脂肪酸、樹脂粉末などの有機物が挙げられる。ベントナイトは若干着色しているが、安価で、粘土鉱物中でも液性限界（試料が水を含んで柔らかくなり、自身の重量で流動し始める時の含水量）が大きく、粘結性が高い。また、低水分で大きな粘結力があり、無機物や有機物に対しても吸着性が高いという特徴を備えているので造粒性が優れ、無毒で安定性が高く、樹脂種の実用性が広いので好ましい。

本発明に使用する無機質充填剤粒子は、樹脂組成物の製造分野で用いられるものであれば特に限定されず、例えば補強・増量剤、難燃剤、抗菌剤、導電剤、紫外線吸収剤、着色剤等が挙げられ、これらを単独または数種を複合して使用することが出来る。具体的には、補強・増量剤としてはシリカ、酸化チタン、アルミナ等の酸化物、チタン酸カリウム等の複合酸化物、水酸化カルシウム等の水酸化物、炭酸カルシウム等の炭酸塩、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、モスハイジ等の硫酸塩、ホウ酸アルミニウム等のホウ酸塩、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸カルシウム、ゾノトライト、タルク、カオリンクレー、クレー、ローセキクレー、マイカ、セピオライト、ガラス粉、ベントナイト、精製ベントナイト、ケイソウ土等の珪酸塩、カーボンブラック等の炭素類、アルミニウム粉等の金属類や、燃焼灰等を用いることができる。また、難燃剤としては水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、酸化アンチモン、リン酸エステル、含ハロゲンリン酸エステル等が、紫外線吸収材としては超微粒子酸化チタン、超微粒子酸化亜鉛等が、抗菌材としては銀及び銀担体等が、導電剤としては銀、銅、ニッケル、錫などの金属類またはそれらの化合物、及びそれらをコーティングした担体やカーボンブラック等が、着色剤としては酸化チタン、酸化亜鉛、弁柄、カドミウムイエロー、フェロシアニンブルー、マイカ等の金属化合物やカーボンブラック等を用いることができる。これらの中でもタルク、水酸化マグネシウム、マイカ、酸化チタン、シ

リカ、ケイ酸カルシウムおよび炭酸カルシウムが本発明に用いる無機質充填剤微粒子として適しているが、加工性や経済性に優れたタルクと水酸化マグネシウムが特に適している。

本発明に用いる無機質充填剤粒子は、樹脂との親和性を高めるために、その表面がトリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトールなどのアルコール類、トリエチルアミンなどのアルカノールアミン、オルガノポリシロキサンなどの有機シリコン系化合物、ステアリン酸などの高級脂肪酸、ステアリン酸カルシウムやステアリン酸マグネシウムなどの脂肪酸金属塩、ポリエチレンワックス、流動パラフィンなどの炭化水素系滑剤、リジン、アルギニンなどの塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体並びにシラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤等のカップリング剤から選ばれる少なくとも1種で処理しておくこともできる。

本発明の顆粒状無機質充填剤に分散剤を0.05～5重量%、好ましくは0.1～2重量%配合すれば、顆粒状無機質充填剤の樹脂成形品中での分散性が向上するので好ましい。用いる分散剤は一般に知られるもので良く、例えば前述のようなアルコール類、アルカノールアミン、有機シリコン系化合物、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩、炭化水素系滑剤、塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体が挙げられる。本発明においては、これらから選ばれる1種か、あるいは2種以上を用いることができ、前述の表面処理を行った無機質充填剤粒子を用い、更に分散剤を加えて造粒しても良い。

さらに、本発明の顆粒状無機質充填剤には、必要に応じて本発明の特徴を損なわない範囲で、分散剤の他に種々の添加剤を配合しても良い。そのような添加剤として酸化防止剤、重金属不活性剤、有機系充填剤等を用いることができ、それらを1種類又は複数を併用することができる。具体的には、例えば有機系充填剤としては木粉、パルプ粉、プラスチックビーズ、プラスチックバルーン等の増量剤、ハロゲン系等の難燃剤、ベンゾフェノン、ベンゾトリアゾール等の紫外

線吸収剤、フェノール系等の抗菌・抗カビ剤、アニオン系、カチオン系、非イオン系等の帯電防止剤、フタロシアニン、キナクリドン、ベンジジン等の顔料、アゾ系、キノロン系等の染料などが挙げられる。

本発明の顆粒状無機質充填剤は、無機質充填剤粒子とバインダとに湿潤剤を加えて成形した後、乾燥することにより製造することができるが、本発明の製造方法においては、先ず無機質充填剤粒子を必要に応じて粉碎した後、バインダと適宜分散剤やその他の添加剤を加え、これに湿潤剤を添加した後、または添加しながらブレンダーやミキサーなどで混合する。無機質充填剤粒子と湿潤剤との親和性が低い場合は、ヘンシェル型ミキサー、スーパーミキサー、ハイスピードミキサー等高周速度の、例えば周速度が5 m/秒以上の攪拌機で攪拌しながら湿潤剤を加えることで、混合物とすることができる。分散剤や添加剤は湿潤剤に予め溶解または分散させて用いることもできる。また、分散剤、添加剤などが湿潤剤に不溶または難溶な場合、これらを予めバインダと混合、好ましくは解砕機などで粉碎しながら混合して用いることもできる。顆粒状無機質充填剤の成形性を高めるため、上記の混合物を一軸型や二軸型などのスクリー式混練機、ローラー式混練機、ニーダー式混練機、高速ミキサーなどを用いて十分に混練しておくこともでき、あるいは、混合時に湿潤剤を加えず、無機質充填剤とバインダとを混練する際に湿潤剤を加えることもできる。無機質充填剤粒子とバインダとは、混合する前または後に分級しても良い。

湿潤剤は無機質充填剤粒子とバインダとの混練性を高めると共に、顆粒状物の硬さを調整するために加え、バインダに予め混合して用いることもできる。湿潤剤としてはアセトンなどの有機溶剤、フタル酸エステルなどの可塑剤、シリコンオイルやヒマシ油などの各種オイル類などを用いても良いが、取扱い易く作業性の良い水、アルコール、またはそれらの混合物を用いるのが好ましい。特に水は乾燥時の揮発成分の処理が容易であるので、湿潤剤としてより好ましい。本発明の顆粒状無機質充填剤に求められる特定の破壊率を得るには、水、アルコール、またはそれらの混合物を湿潤剤として用いる場合、その添加量を無機質充填剤

粒子とバインダの合計を100部とした場合、これに対して10～150重量部、好ましくは30～150重量部にする。

次に、混合物または混練物をバスケット型、ドーム型などのスクリーン式、回転多孔ダイス式などの押出し成形機、ロール式、打錠機などの圧縮成形機、回転パン式、回転ドラム式などの転動成形機、ミキサーなどの攪拌機、流動層造粒機などで造粒・成形した後、必要に応じて整粒機などを用いて整粒し、流動式乾燥機やバンドヒーターなどを用いて乾燥する。顆粒状物の大きさや形状は成形条件や整粒条件により、用途に応じて種々のものを製造できる。例えば、棒状または円柱状粒子を製造する場合、スクリーン式押出し成形機のスクリーン目開きの大きさを变えることで軸径を適宜設定でき、成形後整粒して所望の軸長に裁断することができる。乾燥温度は湿潤剤が蒸発または揮発する温度で良く、水であれば80～150℃、好ましくは80～110℃が適切である。また、本発明の製造方法においては乾燥した後に分級を行うこともできる。

本発明の樹脂組成物は、以上に述べた顆粒状無機質充填剤と樹脂とに必要に応じて各種の添加剤を加え、ヘンシェル型等の攪拌ミキサーで予備混合し、一軸や二軸のエクストルーダーやニーダー等で熔融混練した後、押出し成形やブロー成形したり、あるいはペレット化してから射出成形したものである。本発明の樹脂組成物は、用いる顆粒状無機質充填剤の特性に応じて、優れた強度、難燃性、耐光性、導電性、抗菌性、意匠性などを有しており、例えばバンパー、ダッシュボードなどの自動車部品、家電やOA機器のハウジング類、壁板や屋根板などの建材、日用雑貨類、電線の被覆など広い範囲に適用できる。

本発明で使用される樹脂としては、熱可塑性を示すものや、熱硬化性を示すものの等、一般的に樹脂組成物の分野で用いることができるものであれば特に制限されない。例えば熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、エチレン-プロピレン共重合体のポリオレフィン系樹脂、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリアリ

レート等のポリエステル系樹脂、アクリロニトリルブタジエンスチレン共重合体、ポリスチレン等のスチレン系樹脂、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルルエーテルケトン系樹脂、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルスルホン系樹脂、ポリサルホン系樹脂等の芳香族系樹脂、塩化ビニル、酢酸ビニル等のビニル系樹脂、ウレタン系樹脂、ナイロン系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリアミドイミド系樹脂、ポリエーテルイミド系樹脂、アクリル系樹脂、ゴム系樹脂、フッ素樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリカーボネート系等を主成分とするものを挙げることができ、複数の樹脂を使用することもできる。また、熱硬化性であれば、フェノール系樹脂、ウレタン系樹脂、不飽和ポリエステル系樹脂等を主成分とするものが挙げられる。

本発明により得られる効果は次の機構で発現するものと考えられる。即ち、本発明で使用するバインダは、それ自体がもともと各種樹脂組成物用の樹脂改質剤、添加剤、分散剤、無機質充填剤等として使用されることもあるため、顆粒状無機質充填剤のバインダとして少量を使用しても、顆粒化する無機質充填剤粒子の効果を損なわない。また、顆粒状無機質充填剤に使用するバインダは、粘結性が高く糊状になりやすいため、少量の使用量であっても湿潤剤を使用して無機質充填剤粒子と十分に混練されることによって、混練物そのものも粘結性を有した糊状になる。粘結性を有した糊状の混練物中の湿潤剤を乾燥工程により除去しても、得られた顆粒状無機質充填剤は外部応力に対してある程度の耐久性を有することができ、破壊率を減少させることができる。耐久性の調整はバインダの使用量により調整を行うが、バインダの使用量と耐久性は比例関係にあるので制御が可能である、したがって、樹脂等と顆粒状無機質充填剤との混合、溶融混練作業を低下させないような、或いは、顆粒状無機質充填剤が樹脂組成物中で一次粒子に再分散しやすいような、一定の、或いは、任意の破壊率、即ち、耐久性の度合いを調整しながら顆粒状無機質充填剤の製造が可能となる。その結果として、樹脂組成物の溶融混練作業の生産性を向上させ、経済性を改善し、更に、粉じんの発生も抑え作業環境を改善するものと考えられる。

### 実施例

以下に実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。全ての実施例は、他に詳細に記載するものの以外は、標準的な技術を用いて実施したもの、又は実施することのできるものであり、これは当業者にとり周知で慣用的なものである。

#### 実施例 1

平均一次粒子径 1.8  $\mu\text{m}$  のタルク粒子・ハイファイラー # 5000PJ (松村産業製) 3,900 g と、ベントナイト (豊順洋行製) 100 g とを 30 リットルのブレンダーを用いて約 5 分間混合し、さらに湿潤剤として水 1,600 g を添加しながら約 30 分間混合した。次いで、混合物をバスケット型スクリーン成形機を用い、目開きが 1.2 mm  $\Phi$  のスクリーンから押出し成形した後、平均軸長約 2 mm、直径約 1.2 mm の円柱状 (軸比 1) に整粒し、90  $^{\circ}\text{C}$  の温度で 1 時間流動乾燥して顆粒状タルクを得た。(試料 A)

#### 実施例 2

実施例 1 で用いたタルク粒子とベントナイトとを、それぞれ 3,800 g、200 g 用いた以外は実施例 1 と同様にして顆粒状タルクを得た。(試料 B)

#### 実施例 3

実施例 1 で用いたタルク粒子とベントナイトとを、それぞれ 3,600 g、400 g 用いた以外は実施例 1 と同様にして顆粒状タルクを得た。(試料 C)

#### 実施例 4

分散剤として市販のトリメチロールプロパンを実施例 1 で用いたタルク粒子に対して 0.2 重量% になるように加えた以外は実施例 1 と同様にして顆粒状タルクを得た。(試料 D)

#### 実施例 5

分散剤として市販のトリメチロールプロパンを、実施例 1 で用いたタルク粒子に対して 0.4 重量%になるように加えた以外は実施例 1 と同様にして顆粒状タルクを得た。(試料 E)

#### 実施例 6

分散剤としてポリグリセリン誘導体(味の素ファインテクノ製・プレナライザーMK 600)を、実施例 1 で用いたタルク粒子に対して 1 重量%になるように、湿潤剤の水に分散させて用いた以外は実施例 2 と同様にして顆粒状タルクを得た。(試料 F)

#### 実施例 7

平均一次粒子径 0.84  $\mu\text{m}$ の水酸化マグネシウム粒子(日東粉化製・SX-30MS) 3,800 gと、ベントナイト(豊順洋行製) 200 g及びポリグリセリン誘導体(味の素ファインテクノ製・プレナライザーMK 600) 40 gとを 30 l のブレンダーを用いて混合し、更に湿潤剤として水 1,600 g及びメチルアルコール 600 gを添加しながら混合した。次いで、混合物をバスケット型スクリーン成形機を用い目開きが 1.2 mm $\Phi$ のスクリーンから押出して成形した後、平均長約 2 mm、直径約 1.2 mmの円柱状(軸比 1)に整粒し、90  $^{\circ}\text{C}$ の温度で 1 時間流動乾燥して顆粒物を得た。(試料 G)

#### 実施例 8

平均一次粒子径 1.58  $\mu\text{m}$ の水酸化マグネシウム粒子(ティーエムジー製・ファインマグ MO-T) 1,880 gと、ベントナイト(豊順洋行製) 100 g及びポリグリセリン誘導体(味の素ファインテクノ製・プレナライザーMK 600) 20 gとを、10 l のヘンシェル型ミキサーを用い、主軸回転数 1900 rpm(周速 20 m/sec)にて 30 秒間攪拌し、更に 6 分間攪拌しながら湿潤剤として水 900 gを添加し混合した。次いで、混合物を混合物をドーム型スクリーン成形機を用い目開きが 1.2 mm $\Phi$ のスクリーンから押出して成形した

後、平均長約2 mm、直径約1.2 mmの円柱状（軸比1）に整粒し、実施例7と同様に乾燥して顆粒物を得た。（試料H）

#### 実施例9

平均一次粒子径1.32  $\mu\text{m}$ の水酸化マグネシウム粒子（ティーエムジー製・ファインマグ SN-L）1,880 gと、ベントナイト（豊順洋行製）100 g及びポリグリセリン誘導体（味の素ファインテクノ製・プレナライザーMK600）20 gとを、10 lのヘンシェル型ミキサーを用い、主軸回転数1900 rpm（周速20 m/sec）にて30秒間攪拌し、更に2分間攪拌しながら湿潤剤として水800 gを添加し混合した。次いで、混合物を実施例8と同様にし、成形、整粒し、乾燥して顆粒物を得た。（試料I）

#### 実施例10

平均一次粒子径1.41  $\mu\text{m}$ の市販の水酸化マグネシウム粒子（協和化学工業製・キスマ 5A）1,880 gと、ベントナイト（豊順洋行製）100 g及びポリグリセリン誘導体（味の素ファインテクノ製・プレナライザーMK600）20 gとを、10 lのヘンシェル型ミキサーを用い、主軸回転数1900 rpm（周速20 m/sec）にて30秒間攪拌し、更に60分間攪拌しながら湿潤剤として水800 gを添加し混合した。次いで、混合物を実施例8と同様に成形、整粒し、乾燥して顆粒物を得た。（試料J）

#### 実施例11

平均一次粒子径5.47  $\mu\text{m}$ の市販のシリカ粒子957 gと、ベントナイト（豊順洋行製）30 gとを、10 lのヘンシェル型ミキサーを用い、主軸回転数2920 rpm（周速31 m/sec）にて30秒間攪拌し、更に45分間攪拌しながら湿潤剤としての水800 gと、界面活性剤（東邦化学工業製・エアロール CT-1L）13 gとの混合液を添加し混合した。次いで、実施例8と同様に成形、整粒し、乾燥して顆粒物を得た。（試料K）



### 実施例 12

平均一次粒子径  $5.47\ \mu\text{m}$  の市販のシリカ粒子  $960\ \text{g}$  と、ベントナイト（豊順洋行製） $30\ \text{g}$  とを、10 l のヘンシェル型ミキサーを用い、主軸回転数  $3380\ \text{rpm}$ （周速  $36\ \text{m/sec}$ ）にて30秒間攪拌し、更に30分間攪拌しながら湿潤剤としての水  $900\ \text{g}$  と、界面活性剤（東邦化学工業製・エアロール CT-1 L） $10\ \text{g}$  との混合液を添加し混合した。次いで、実施例8と同様にして成形、整粒し、乾燥して顆粒物を得た。（試料 L）

### 比較例 1

実施例1で用いたタルク粒子をそのまま比較例として用いた。（試料 a）

### 比較例 2

実施例1で用いたタルク粒子  $5,000\ \text{g}$  をカサ比重増加機（栗本鉄工製・クリバック）で真空脱気し、次にロール圧縮造粒機（栗本鉄工製・ローラーコンパクター）で圧縮したタルクを生産した。（試料 b）

### 比較例 3

実施例7で使用した水酸化マグネシウム粒子をそのまま比較例として用いた。（試料 c）

### 比較例 4

実施例8で使用した水酸化マグネシウム粒子をそのまま比較例として用いた。（試料 d）

### 比較例 5

実施例9で使用した水酸化マグネシウム粒子をそのまま比較例として用いた（試料 e）

## 比較例 6

実施例 10 で使用した水酸化マグネシウム粒子をそのまま比較例として用いた (試料 f)

## 比較例 7

実施例 11 で使用したシリカ粒子をそのまま比較例として用いた (試料 g)

## 評価 1 見掛け密度と破壊率の測定

実施例 1 ～ 12 で得られた試料 A ～ L、及び比較例 1 ～ 7 で得られた試料 a ～ g の見掛け密度と破壊率とを前記の方法で測定した。その結果を表 1 に示す。通常の無機質充填剤粒子は破壊率が高く、見掛け密度も小さい。また、物理的に脱気、圧縮したタルクでは、本発明に所望される 80 % 以下の破壊率を得られない。

表 1

		無機質充填剤 微粒子種	バインダ 含有量 (重量%)	分散剤 含有量 (重量%)	見掛け 密度 (g/ml)	破壊率 (%)
実施例 1	試料 A	タルク	2.5	0.0	0.88	47
実施例 2	試料 B	タルク	5.0	0.0	0.88	30
実施例 3	試料 C	タルク	10.0	0.0	0.88	11
実施例 4	試料 D	タルク	5.0	0.2	0.88	22
実施例 5	試料 E	タルク	5.0	0.4	0.88	19
実施例 6	試料 F	タルク	5.0	1.0	0.88	30
実施例 7	試料 G	Mg(OH) <sub>2</sub>	5.0	1.0	0.84	25
実施例 8	試料 H	Mg(OH) <sub>2</sub>	5.0	1.0	0.63	9
実施例 9	試料 I	Mg(OH) <sub>2</sub>	5.0	1.0	0.67	15
実施例 10	試料 J	Mg(OH) <sub>2</sub>	5.0	1.0	0.67	8
実施例 11	試料 K	SiO <sub>2</sub>	3.0	1.3	0.32	57
実施例 12	試料 L	SiO <sub>2</sub>	3.0	1.0	0.31	67
比較例 1	試料 a	タルク	0.0	0.0	0.12	100
比較例 2	試料 b	タルク	0.0	0.0	0.78	85
比較例 3	試料 c	Mg(OH) <sub>2</sub>	0.0	0.0	0.26	100
比較例 4	試料 d	Mg(OH) <sub>2</sub>	0.0	0.0	0.37	100
比較例 5	試料 e	Mg(OH) <sub>2</sub>	0.0	0.0	0.38	100
比較例 6	試料 f	Mg(OH) <sub>2</sub>	0.0	0.0	0.37	100
比較例 7	試料 g	SiO <sub>2</sub>	0.0	0.0	0.20	100

## 評価2 生産量の評価

実施例1～12で得られた試料A～L、及び比較例1～7で得られた試料a～gを、市販のポリプロピレンペレット（ブロックコポリマー・MFR=10）にそれぞれ配合し、ヘンシェル型混合機を用いて均一に混合後、二軸押出機（池貝鉄工製・PCM-30型）を用いて熔融混練し、タルク粒子を20重量%含むペレット、水酸化マグネシウム粒子を55重量%含むペレット、あるいはシリカ粒子を10重量%含むペレットに成形した。生産量は1時間当たりの吐出量として計測した。その結果を表2に示す。

## 評価3 分散性の評価

上記のペレット10gを厚さ3mmの2枚の鉄板の間に挟み、230℃に加熱したプレス機で2分間予熱後、100kg/cm<sup>2</sup>で1分間加圧した。次いで、2枚の鉄板をプレス機より取り出し、常温水で冷却された別のプレス機に置き換え100kg/cm<sup>2</sup>で3分間加圧しながら冷却した。2枚の鉄板の間でペレットは厚さ0.5mmの円盤状のシートとなる。得られた円盤状のシートを目視により観察し、分散状態を状態の良いもの順に○、△、×で評価した。その結果を表2に示す。

表 2

		無機質充填剤 微粒子種	生産量 (kg/hr)	分散性
実施例 1	試料 A	タルク	1.6	○
実施例 2	試料 B	タルク	1.6	○
実施例 3	試料 C	タルク	1.7	○
実施例 4	試料 D	タルク	1.6	○
実施例 5	試料 E	タルク	1.6	○
実施例 6	試料 F	タルク	1.5	○
実施例 7	試料 G	Mg(OH) <sub>2</sub>	1.4	○
実施例 8	試料 H	Mg(OH) <sub>2</sub>	1.3	○
実施例 9	試料 I	Mg(OH) <sub>2</sub>	1.3	○
実施例 10	試料 J	Mg(OH) <sub>2</sub>	1.3	○
実施例 11	試料 K	SiO <sub>2</sub>	1.3	○
実施例 12	試料 L	SiO <sub>2</sub>	1.5	○
比較例 1	試料 a	タルク	6	○
比較例 2	試料 b	タルク	1.0	△
比較例 3	試料 c	Mg(OH) <sub>2</sub>	3	△
比較例 4	試料 d	Mg(OH) <sub>2</sub>	4	△
比較例 5	試料 e	Mg(OH) <sub>2</sub>	4	△
比較例 6	試料 f	Mg(OH) <sub>2</sub>	3	△
比較例 7	試料 g	SiO <sub>2</sub>	2	×

#### 評価 4 機械物性の測定

実施例 1～6 で得られた試料 A～F、及び比較例 1～2 で得られた試料 a、b を評価 2 と同様の方法でペレット化した後、射出成型機（日本精工所製・クロックナー F 85 型）を用い、JIS K 7152 に準拠して射出成形を行い、JIS K 7139 に規定される多目的試験片を作成した。得られた各々の試験片を用いて、引張強度（JIS K 7113）、伸び率（JIS K 7113）、曲げ弾性率（JIS K 7203）、IZOD 衝撃値（JIS K 7110）、および熱変形温度（JIS K 7207）をそれぞれの JIS 規格に準じて測定を行った。その結果を表 3 に示す。

表 3

		引張強度 (Mpa)	伸び率 (%)	曲げ弾性率 (Mpa)	IZOD衝撃値 (Kj/m <sup>2</sup> )	熱変形温度 (°C)
実施例 1	試料 A	28.3	45.9	2,640	8.4	134
実施例 2	試料 B	28.0	43.8	2,420	7.6	132
実施例 3	試料 C	27.1	45.9	2,300	7.2	131
実施例 4	試料 D	27.3	43.4	2,440	7.6	132
実施例 5	試料 E	28.1	40.0	2,570	7.5	134
実施例 6	試料 F	27.8	44.6	2,530	8.7	130
比較例 1	試料 a	27.5	21.0	2,400	7.5	134
比較例 2	試料 b	27.0	20.5	2,350	6.8	133

## 評価 5 難燃性の評価

実施例 7～10 で得られた試料 G～J、及び比較例 3～6 で得られた試料 c～f を評価 2 と同様の方法でペレット化した後、JIS K7201 による酸素指数法燃焼試験と UL 規格（1/8 インチ）による燃焼試験を実施した。その結果を表 4 に示す。酸素指数が高い方が燃え難い。また、UL 規格による難燃性の評価は下記の通りである。

UL 規格による難燃性の評価：（優）V-0 > V-1 > V-2 （劣）

表 4

		酸素指数	UL規格
実施例 7	試料 G	26.0	V-0
実施例 8	試料 H	26.0	V-0
実施例 9	試料 I	26.0	V-0
実施例 10	試料 J	26.0	V-0
比較例 1	試料 c	24.5	V-2
比較例 4	試料 d	24.0	V-2
比較例 5	試料 e	24.0	V-2
比較例 6	試料 f	24.5	V-1

なお、実施例 11、12 で得られた試料 K、L 及び比較例 7 で得られた試料 g については、いずれも優れたアンチブロッキング性を示す。

表 2～4 で明らかなように、本発明の顆粒状無機質充填剤は破壊率が 5～80 % の範囲にあり、見掛け密度は 0.1～3.0 g/ml の範囲にあるので、樹脂

組成物の機械的物性、表面外観、難燃性やアンチブロッキング性等の機能性を損なわずに生産量を劇的に改善することができ、優れた耐久性を有している。

#### 産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明に係る、無機質充填剤粒子とバインダとからなり見掛け密度が0.1～3.0 g/ml、破壊率が5～80%の顆粒状無機質充填剤によれば、これを使用して樹脂組成物を製造するときに、劇的に生産効率を向上させ、経済性を著しく改善することができる。また、本発明に係る顆粒状無機質充填剤によれば、機械的物性、表面外観、難燃性やアンチブロッキング性に優れた樹脂組成物を提供することができる。

本発明は、前述の説明及び実施例に特に記載した以外も、実行できることは明らかである。上述の教示に鑑みて、本発明の多くの改変及び変形が可能であり、従ってそれらも本件添付の請求の範囲の範囲内のものである。本件は特願 2000-357562号（出願日：平成12年11月24日）及び特願 2001-142036号（出願日：平成13年5月11日）を優先権主張の基礎とする出願であって、当該出願に添付の明細書の内容はそれを参照することにより本明細書に含めて解釈されるべきものである。

## 請 求 の 範 囲

1. 平均一次粒子径が0.01～20  $\mu\text{m}$ の無機質充填剤粒子と、バインダとからなり、見掛け密度が0.1～3.0  $\text{g}/\text{ml}$ 、破壊率が5～80重量%であることを特徴とする顆粒状無機質充填剤。
2. バインダを0.1～20重量%含有することを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
3. バインダが粘土鉱物であることを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
4. バインダがベントナイトであることを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
5. 平均軸長が0.5～5.0 mm、軸比が0.3～3であることを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
6. 分散剤を0.05～5重量%含有することを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
7. 分散剤がアルコール類、アルカノールアミン、有機シリコン系化合物、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩、炭化水素系滑剤、塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項6記載の顆粒状無機質充填剤。
8. 無機質充填剤粒子がアルコール類、アルカノールアミン、有機シリコン系化合物、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩、炭化水素系滑剤、塩基性アミノ酸、ポリグリセリン及びそれらの誘導体並びにシラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤から選ばれる少なくとも1種で処理されたものであることを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤。
9. 無機質充填剤粒子とバインダとに湿潤剤を加えて成形した後、乾燥することを特徴とする請求項1記載の顆粒状無機質充填剤の製造方法。
10. 無機質充填剤粒子とバインダと分散剤とに湿潤剤を加えて成形した後、乾燥することを特徴とする請求項9記載の製造方法。

11. 無機質充填剤粒子とバインダとを攪拌しながら湿潤剤を加えて混合した後、成形することを特徴とする請求項9記載の製造方法。
12. 無機質充填剤粒子とバインダと分散剤とを攪拌しながら湿潤剤を加えて混合した後、成形することを特徴とする請求項11記載の製造方法。
13. 湿潤剤が水、アルコール類から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項9記載の製造方法。
14. 湿潤剤が予め分散剤と混合されたものであることを特徴とする請求項10記載の製造方法。
15. 湿潤剤が予めバインダと混合されたものであることを特徴とする請求項9記載の製造方法。
16. 分散剤が予めバインダと混合されたものであることを特徴とする請求項10記載の製造方法。
17. 無機質充填剤粒子とバインダの合計を100重量部として、これに対し湿潤剤を10～150重量部加えることを特徴とする請求項9記載の製造方法。
18. 請求項1記載の顆粒状無機質充填剤を配合した樹脂組成物。
19. 樹脂が熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂及びそれらの配合物から成る群から選ばれたものを主成分としているものである請求項18記載の樹脂組成物。
20. 樹脂が(1)ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂及びエチレン-プロピレン共重合体のポリオレフィン系樹脂、(2)ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート及びポリアリレートを含むポリエステル系樹脂、(3)アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体及びポリスチレンを含むスチレン系樹脂、(4)ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルエーテルケトン系樹脂、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルスルホン系樹脂及びポリサルホン系樹脂を含む芳香族系樹脂、(5)塩化ビニル及び酢酸ビニルを含むビニル系樹脂、(6)熱可塑性ウレタン系樹脂、(7)ナイロン系樹脂、(8)ポリイミド系樹脂、(9)ポリアミドイミド系樹脂、(10)ポリエーテルイミド系樹脂、(11)アクリル系樹脂、(12)ゴム系樹脂、(13)フッ素樹脂、(14)ポリアセタール系樹脂、(15)ポリカーボネート系樹脂、(16)フェノール系樹脂



、(17)熱硬化性ウレタン系樹脂、(18)不飽和ポリエステル系樹脂及び(19)それらの配合物から成る群から選ばれたものを主成分としているものである請求項18記載の樹脂組成物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/10137

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C09C3/06, C08K9/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C09C1/00-3/12, C08K9/00-9/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 957140 A2 (Nikki Chemical Co., Ltd.), 17 November, 1999 (17.11.1999), Claims; working example; Par. No. [0061] & KR 99088314 A & US 6146763 A & JP 2000-34465 A	1-20
X	US 4338241 A (Onomichi Kumika K.K.), 06 July, 1982 (06.07.1982), Claims; working example & JP 56-10547 A	1-20
X	JP 5-117658 A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 14 May, 1993 (14.05.1993), Claims; working example 1 (Family: none)	1-20

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
---	--

Date of the actual completion of the international search  
29 January, 2002 (29.01.02)

Date of mailing of the international search report  
12 February, 2002 (12.02.02)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09C3/06, C08K9/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09C1/00-3/12, C08K9/00-9/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 957140 A2 (日揮化学株式会社), 1999. 1 1. 17, 特許請求の範囲, 実施例, 段落番号 (0061) & KR 99088314 A&US 6146763 A&JP 20 00-34465 A	1-20
X	US 4338241 A (尾道クミカ工業株式会社), 198 2. 07. 06, 特許請求の範囲, 実施例 & JP 56-1054 7 A	1-20

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29. 01. 02

国際調査報告の発送日

12.02.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

井上 千弥子



4V

9356

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 5-117658 A (新日鐵化学株式会社), 1993. 05. 14, 特許請求の範囲, 実施例1 (ファミリーなし)	1-20